

FP05-0(28)

09.3.-3 JP

ALLOWED

(12)特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日

2003年11月20日 (20.11.2003)

PCT

(10) 国際公開番号

WO 03/095560 A1

(51) 国際特許分類⁷: C08L 83/05,
C08J 5/18, H05K 9/00, C08L 83/07

(21) 国際出願番号: PCT/JP03/06031

(22) 国際出願日: 2003年5月14日 (14.05.2003)

(25) 国際出願の言語: 日本語

(26) 国際公開の言語: 日本語

(30) 優先権データ:
特願2002-138719 2002年5月14日 (14.05.2002) JP(71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 東
レ・ダウコーニング・シリコン株式会社 (DOW
CORNING TORAY SILICONE CO., LTD.) [JP/JP]; 〒
100-0005 東京都千代田区丸の内一丁目1番3号
Tokyo (JP). ティーディーケー株式会社 (TDK COR-
PORATION) [JP/JP]; 〒103-0027 東京都中央区日本
橋一丁目13番1号 Tokyo (JP).

(72) 発明者; および

(75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 関場一広 (SEK-
IBA, Kazuhiro) [JP/JP]; 〒299-0108 千葉県市原市千種
海岸2番2東レ・ダウコーニング・シリコン株式
会社内 Chiba (JP). 田中隆 (TANAKA, Takashi) [JP/JP];
〒103-0027 東京都中央区日本橋一丁目13番1号
ティーディーケー株式会社内 Tokyo (JP). 佐々木寿規 (SASAKI, Hisanori) [JP/JP]; 〒103-0027 東京都中央
区日本橋一丁目13番1号 ティーディーケー株式
会社内 Tokyo (JP). 高橋英臣 (TAKAHASHI, Hideomi)
[JP/JP]; 〒103-0027 東京都中央区日本橋一丁目13番
1号 ティーディーケー株式会社内 Tokyo (JP).(74) 代理人: 久保田 芳豊 (KUBOTA, Yoshitaka); 〒262-
0014 千葉県千葉市花見川区さつきが丘1丁目43番
地の27 アサ国際特許事務所 千葉オフィス Chiba
(JP).(81) 指定国 (国内): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB,
BG, BR, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK,
DM, DZ, EC, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU,
ID, IL, IN, IS, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT,
LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NI, NO,
NZ, OM, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL,
TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU,
ZA, ZM, ZW.(84) 指定国 (広域): ARIPO 特許 (GH, GM, KE, LS, MW, MZ,
SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア特許 (AM,
AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ特許
(AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB,
GR, HU, IE, IT, LU, MC, NL, PT, RO, SE, SI, SK, TR),
OAPI 特許 (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW,
ML, MR, NE, SN, TD, TG).添付公開書類:
— 国際調査報告書

[続葉有]

(54) Title: CURABLE SILICONE COMPOSITION FOR THE PRODUCTION OF COMPOSITE SOFT MAGNETIC MATERI-
ALS, AND COMPOSITE SOFT MAGNETIC MATERIALS

(54) 発明の名称: 複合軟磁性体形成用硬化性シリコン組成物および複合軟磁性体

(57) Abstract: A curable silicone composition for the production of composite soft magnetic materials, which comprises at least (A) a curable organopolysiloxane, (B) a curing agent, (C) a soft magnetic powder, and (D) an organosiloxane represented by the general formula: $[R^1_x R^{2(a)}_x SiO(R^2 SiO)_n]_b SiR^{2(a+b+c)}(OR^3)_c$ [wherein R^1 is a monovalent hydrocarbon group having an aliphatic unsaturated bond; R^2 s are each independently a monovalent hydrocarbon group not containing an aliphatic unsaturated bond; R^3 is alkyl or alkoxyalkyl; a is an integer of 1 to 3; b is an integer of 1 to 3 and c is an integer of 1 to 3 with the sum of b and c being 2 to 4; and n is an integer of 0 or above]; and composite soft magnetic materials produced by curing the composition. The curable silicone composition can form composite soft magnetic materials with excellent moldability even when it contains a large amount of a soft magnetic powder with the aim of composite soft magnetic materials excellent in electromagnetic wave absorption characteristics, and the composite soft magnetic materials are excellent in electromagnetic wave absorption characteristics, flame retardance and thermal conductivity.(57) 要約: (A)硬化性オルガノポリシロキサン、(B)硬化剤、(C)軟磁性粉、および(D)一般式:
 $[R^1_x R^{2(a)}_x SiO(R^2 SiO)_n]_b SiR^{2(a+b+c)}(OR^3)_c$ (式中、 R^1 は脂肪族不飽和結合を有する一価炭化水素基、 R^2 は同種もしくは異種の脂肪族不飽和結合を有さない一価炭化水素基、 R^3 はアルキル基またはアルコキシアルキル基、
aは1~3の整数、bは1~3の整数、cは1~3の整数、かつ、b+cは2~4の整数、nは0以上の整数)
で表されるオルガノシロキサン、から少なくともなる複合軟磁性体形成用硬化性シリコン組成物、および該組
成物を硬化してなる複合軟磁性体。電磁波吸収特性が優れる複合軟磁性体を得るため軟磁性粉を高充填しても、
前記複合軟磁性体を成形性良く形成できる硬化性シリコン組成物、および電磁波吸収特性が優れ、かつ難燃性
および熱伝導性が優れる複合軟磁性体を提供できる。

WO 03/095560 A1



2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

明 細 書

複合軟磁性体形成用硬化性シリコーン組成物および複合軟磁性体

技術分野

本発明は、複合軟磁性体形成用硬化性シリコーン組成物および複合軟磁性体に関し、詳しくは、電磁波吸収特性が優れる複合軟磁性体を得るため軟磁性粉を高充填しても、前記複合軟磁性体を成形性良く形成することができる硬化性シリコーン組成物、および電磁波吸収特性が優れ、かつ難燃性および熱伝導性が優れる複合軟磁性体に関する。なお、本発明での電磁波吸収特性とは、遠方電磁界の吸収だけでなく、近傍電磁界に対する吸収効果も含んだ広義の範囲を表している。

10 背景技術

軟磁性粉を含有する硬化性シリコーン組成物、およびそれを硬化してなる複合軟磁性体は、例えば、特開 2000-294977 号公報、特開 2001-44687 号公報、特開 2001-294752 号公報、特開 2001-119189 号公報により公知である。一般に、複合軟磁性体の電磁波吸収特性を向上させるためには、軟磁性粉を硬化性シリコーン組成物中に高充填する必要がある。

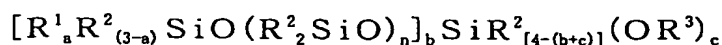
しかし、軟磁性粉を硬化性シリコーン組成物に高充填すると、均一な組成物が得られなかったり、また、得られる組成物の成形性が悪化するという問題があった。

本発明者らは上記の課題について鋭意検討した結果、本発明に達した。

すなわち、本発明の目的は、電磁波吸収特性が優れる複合軟磁性体を得るため軟磁性粉を高充填しても、前記複合軟磁性体を成形性良く形成することができる硬化性シリコーン組成物、および電磁波吸収特性が優れ、かつ難燃性および熱伝導性が優れる複合軟磁性体を提供することにある。

発明の開示

25 本発明の複合軟磁性体形成用硬化性シリコーン組成物は、(A)硬化性オルガノポリシロキサン、(B)硬化剤、(C)軟磁性粉、および(D)一般式：



(式中、 R^1 は脂肪族不飽和結合を有する一価炭化水素基であり、 R^2 は同種もしくは異種の脂肪族不飽和結合を有さない一価炭化水素基であり、 R^3 はアルキル基またはアルコキシアルキル基であり、 a は1～3の整数であり、 b は1～3の整数
5 であり、 c は1～3の整数であり、かつ、 $b+c$ は2～4の整数であり、 n は0以上の整数である。)

で表されるオルガノシロキサン、から少なくともなることを特徴とする。

また、本発明の複合軟磁性体は、上記の組成物を硬化してなることを特徴とする。

10

発明を実施するための最良の形態

はじめに、本発明の複合軟磁性体形成用硬化性シリコーン組成物を詳細に説明する。

(A)成分は本組成物の主剤である硬化性オルガノポリシロキサンであり、(B)成分は前記(A)成分を架橋するための硬化剤である。本組成物を硬化して得られる硬化物の性状は限定されないが、例えば、高硬度のゴム状、低硬度のゴム状、
15 ゲル状が挙げられる。また、本組成物の硬化機構は限定されず、例えば、ヒドロシリル化反応、有機過酸化物によるフリーラジカル反応、縮合反応が挙げられ、特に、加熱により速やかに硬化し、副生成物が発生しないことからヒドロシリル化反応であることが好ましい。

20 本組成物がヒドロシリル化反応により硬化する場合には、(A)成分は一分子中に平均0.1個以上のケイ素原子結合アルケニル基を有するオルガノポリシロキサンであることが好ましく、さらに、一分子中に平均0.5個以上のケイ素原子結合アルケニル基を有するオルガノポリシロキサンであることが好ましく、特に、一分子中に平均0.8個以上のケイ素原子結合アルケニル基を有するオルガノポリシ
25 ロキサンであることが好ましい。これは、一分子中のケイ素原子結合アルケニル基の平均値が上記範囲の下限未満であると、得られる組成物が十分に硬化しなくなる傾向があるからである。

このオルガノポリシロキサン中のアルケニル基としては、例えば、ビニル基、

アリル基、ブテニル基、ペンテニル基、ヘキセニル基が挙げられ、好ましくは、
ビニル基である。また、このオルガノポリシロキサン中のアルケニル基以外のケ
イ素原子に結合している基としては、例えば、メチル基、エチル基、プロピル基
、ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基等のアルキル基；シクロペンチル基、シク
5 ロヘキシル基等のシクロアルキル基；フェニル基、トリル基、キシリル基等のア
リール基；ベンジル基、フェネチル基等のアラルキル基；3,3,3-トリフルオ
ロプロピル基、3-クロロプロピル基等のハロゲン化アルキル基が挙げられ、好
ましくは、アルキル基、アリール基であり、特に好ましくは、メチル基、フェニ
ル基である。また、このオルガノポリシロキサンの25℃における粘度は限定さ
10 れないが、50～100,000mPa・sの範囲内であることが好ましく、特に、1
00～50,000mPa・sの範囲内であることが好ましい。これは、25℃におけ
る粘度が上記範囲の下限未満であると、得られるシリコーン硬化物の物理的特性
が著しく低下する傾向があるからであり、一方、上記範囲の上限を超えると、得
られる硬化性シリコーン組成物の取扱作業性が著しく低下する傾向があるからで
15 ある。このようなオルガノポリシロキサンの分子構造は限定されず、例えば、直
鎖状、分岐鎖状、一部分岐を有する直鎖状、樹枝状（デンドリマー状）が挙げら
れ、好ましくは、直鎖状、一部分岐を有する直鎖状である。また、このオルガノ
ポリシロキサンは、これらの分子構造を有する単一の重合体、これらの分子構造
からなる共重合体、またはこれらの重合体の混合物であつてもよい。

20 このようなオルガノポリシロキサンとしては、例えば、分子鎖両末端ジメチル
ビニルシロキシ基封鎖ジメチルポリシロキサン、分子鎖両末端メチルフェニルビ
ニルシロキシ基封鎖ジメチルポリシロキサン、分子鎖両末端ジメチルビニルシロ
キシ基封鎖ジメチルシロキサン・メチルフェニルシロキサンコポリマー、分子鎖
両末端ジメチルビニルシロキシ基封鎖ジメチルシロキサン・メチルビニルシロキ
25 サンコポリマー、分子鎖両末端トリメチルシロキシ基封鎖ジメチルシロキサン・
メチルビニルシロキサンコポリマー、分子鎖両末端ジメチルビニルシロキシ基封
鎖メチル(3,3,3-トリフルオロプロピル)ポリシロキサン、分子鎖両末端シラ
ノール基封鎖ジメチルシロキサン・メチルビニルシロキサンコポリマー、分子鎖

両末端シラノール基封鎖ジメチルシロキサン・メチルビニルシロキサン・メチルフェニルシロキサンコポリマー、式： $(\text{CH}_3)_3\text{SiO}_{1/2}$ で表されるシロキサン単位と式： $(\text{CH}_3)_2(\text{CH}_2=\text{CH})\text{SiO}_{1/2}$ で表されるシロキサン単位と式： $\text{CH}_3\text{SiO}_{3/2}$ で表されるシロキサン単位と式： $(\text{CH}_3)_2\text{SiO}_{2/2}$ で表されるシロキサン単位からなるオルガノシロキサンコポリマーが挙げられる。

本組成物がヒドロシリル化反応により硬化する場合には、(B)成分は、一分子中に平均2個以上のケイ素原子結合水素原子を有するオルガノポリシロキサンと白金系触媒からなる。

このオルガノポリシロキサン中の水素原子以外のケイ素原子結合に結合している基としては、例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基等のアルキル基；シクロペンチル基、シクロヘキシル基等のシクロアルキル基；フェニル基、トリル基、キシリル基等のアリール基；ベンジル基、フェネチル基等のアラルキル基；3,3,3-トリフルオロプロピル基、3-クロロプロピル基等のハロゲン化アルキル基が挙げられ、好ましくは、アルキル基、アリール基であり、特に好ましくは、メチル基、フェニル基である。また、このオルガノポリシロキサンの25℃における粘度は限定されないが、1～100,000 mPa・sの範囲内であることが好ましく、特に、1～5,000 mPa・sの範囲内であることが好ましい。このようなオルガノポリシロキサンの分子構造は限定されず、例えば、直鎖状、分岐鎖状、一部分岐を有する直鎖状、環状、樹枝状（デンドリマー状）が挙げられる。このオルガノポリシロキサンは、これらの分子構造を有する単一の重合体、これらの分子構造からなる共重合体、またはこれらの重合体の混合物であってもよい。

このようなオルガノポリシロキサンとしては、例えば、分子鎖両末端ジメチルハイドロジェンシロキシ基封鎖ジメチルポリシロキサン、分子鎖両末端トリメチルシロキシ基封鎖ジメチルシロキサン・メチルハイドロジェンシロキサンコポリマー、分子鎖両末端ジメチルハイドロジェンシロキシ基封鎖ジメチルシロキサン・メチルハイドロジェンシロキサンコポリマー、式： $(\text{CH}_3)_3\text{SiO}_{1/2}$ で表されるシロキサン単位と式： $(\text{CH}_3)_2\text{HSiO}_{1/2}$ で表されるシロキサン単位と式： $\text{SiO}_{4/2}$

で表されるシロキサン単位からなるオルガノシロキサンコポリマーが挙げられる。
。

本組成物において、このオルガノポリシロキサンの含有量は、(A)成分中のケイ素原子結合アルケニル基 1 モルに対して、本成分中のケイ素原子結合水素原子が 0.1 ~ 10 モルの範囲内となる量であることが好ましく、特に、0.1 ~ 5 モルの範囲内となる量であることが好ましい。これは本成分の含有量が上記範囲の下限未満となる量であると、得られる硬化性シリコーン組成物が十分に硬化しなくなる傾向があるからであり、一方、上記範囲の上限を超えると、得られるシリコーン硬化物が非常に硬質となり、表面に多数のクラックを生じたりする傾向があるからである。

また、白金系触媒としては、塩化白金酸、塩化白金酸のアルコール溶液、白金のオレフィン錯体、白金のアルケニルシロキサン錯体、白金のカルボニル錯体が例示される。白金系触媒の含有量は、(A)成分に対して触媒中の白金金属が重量単位で 0.01 ~ 1,000 ppm の範囲内となる量であることが好ましく、特に、0.1 ~ 500 ppm の範囲内となる量であることが好ましい。これは、本成分の含有量が上記範囲の下限未満であると、得られる硬化性シリコーン組成物が十分に硬化しなくなる傾向があるからであり、一方、上記範囲の上限を超える量を含有了ても得られる硬化性シリコーン組成物の硬化速度は著しくは向上しないからである。

また、本組成物がフリーラジカル反応により硬化する場合には、(A)成分のオルガノポリシロキサンは特に限定されないが、一分子中に少なくとも 1 個のケイ素原子結合アルケニル基を有するオルガノポリシロキサンであることが好ましい。
。

このオルガノポリシロキサン中のアルケニル基としては、前記と同様のアルケニル基が例示され、好ましくは、ビニル基である。また、このオルガノポリシロキサン中のアルケニル基以外のケイ素原子に結合している基としては、前記と同様のアルキル基、シクロアルキル基、アリール基、アラルキル基、ハロゲン化アルキル基が例示され、好ましくは、アルキル基、アリール基であり、特に好まし

くは、メチル基、フェニル基である。また、このオルガノポリシロキサンは、 25°C における粘度は限定されないが、 $50 \sim 100,000 \text{ mPa}\cdot\text{s}$ の範囲内であることが好ましく、特に、 $100 \sim 50,000 \text{ mPa}\cdot\text{s}$ の範囲内であることが好ましい。これは、 25°C における粘度が上記範囲の下限未満であると、得られるシリコーン硬化物の物理的特性が著しく低下する傾向があるからであり、一方、上記範囲の上限を超えると、得られる硬化性シリコーン組成物の取扱作業性が著しく低下する傾向があるからである。このようなオルガノポリシロキサンの分子構造は限定されず、例えば、直鎖状、分岐鎖状、一部分岐を有する直鎖状、樹枝状（デンドリマー状）が挙げられ、好ましくは、直鎖状、一部分岐を有する直鎖状である。また、このオルガノポリシロキサンは、これらの分子構造を有する単一の重合体、これらの分子構造からなる共重合体、またはこれらの重合体の混合物であってもよい。

このようなオルガノポリシロキサンとしては、例えば、分子鎖両末端ジメチルビニルシロキシ基封鎖ジメチルポリシロキサン、分子鎖両末端メチルフェニルビニルシロキシ基封鎖ジメチルポリシロキサン、分子鎖両末端ジメチルビニルシロキシ基封鎖ジメチルシロキサン・メチルフェニルシロキサンコポリマー、分子鎖両末端ジメチルビニルシロキシ基封鎖ジメチルシロキサン・メチルビニルシロキサンコポリマー、分子鎖両末端トリメチルシロキシ基封鎖ジメチルシロキサン・メチルビニルシロキサンコポリマー、分子鎖両末端ジメチルビニルシロキシ基封鎖メチル(3,3,3-トリフルオロプロピル)ポリシロキサン、分子鎖両末端シラノール基封鎖ジメチルシロキサン・メチルビニルシロキサンコポリマー、分子鎖両末端シラノール基封鎖ジメチルシロキサン・メチルビニルシロキサン・メチルフェニルシロキサンコポリマー、式： $(\text{CH}_3)_3\text{SiO}_{1/2}$ で表されるシロキサン単位と式： $(\text{CH}_3)_2(\text{CH}_2=\text{CH})\text{SiO}_{1/2}$ で表されるシロキサン単位と式： $\text{CH}_3\text{SiO}_{3/2}$ で表されるシロキサン単位と式： $(\text{CH}_3)_2\text{SiO}_{2/2}$ で表されるシロキサン単位からなるオルガノシロキサンコポリマーが挙げられる。

また、本組成物がフリーラジカル反応により硬化する場合には、(B)成分は有機過酸化物である。この有機過酸化物としては、ベンゾイルパーオキサイド、p

ーメチルベンゾイルパーオキシド、ジクミルパーオキシド、2,5-ジメチルビス(2,5-*t*-ブチルパーオキシ)ヘキサン、ジ-*t*-ブチルパーオキシド、*t*-ブチルパーベンゾエートが例示される。この有機過酸化物の含有量は、(A)成分100重量部に対して0.1～5重量部の範囲内であることが好ましい。

- 5 また、本組成物が縮合反応により硬化する場合には、(A)成分は、一分子中に少なくとも2個のシラノール基もしくはケイ素原子結合加水分解性基を有するオルガノポリシロキサンである。このオルガノポリシロキサン中のケイ素原子結合加水分解性基としては、例えば、メトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基等のアルコキシ基；ビニロキシ基、イソプロペニルオキシ基、1-エチルー2-メチルビ
10 ニルオキシ基等のアルケノキシ基；メトキシエトキシ基、エトキシエトキシ基、メトキシプロポキシ基等のアルコキシアルコキシ基；アセトキシ基、オクタノイルオキシ基等のアシロキシ基；ジメチルケトオキシム基、メチルエチルケトオキシム基等のケトオキシム基；ジメチルアミノ基、ジエチルアミノ基、ブチルアミノ基等のアミノ基；ジメチルアミノキシ基、ジエチルアミノキシ基等のアミノキシ基；
15 N-メチルアセトアミド基、N-エチルアセトアミド基等のアミド基が挙げられる。また、このオルガノポリシロキサン中のシラノール基またはケイ素原子結合加水分解性基以外のケイ素原子に結合している基としては、前記と同様のアルキル基、シクロアルキル基、アルケニル基、アリール基、アラルキル基、ハロゲン化アルキル基が例示される。また、このオルガノポリシロキサンの25℃
20 における粘度は限定されないが、20～100,000mPa・sの範囲内であることが好ましく、特に、100～100,000mPa・sの範囲内であることが好ましい。なお、(D)成分に該当するオルガノポリシロキサンは本成分に含まれない。

- このようなオルガノポリシロキサンとしては、例えば、分子鎖両末端シラノール基封鎖ジメチルポリシロキサン、分子鎖両末端シラノール基封鎖ジメチルシロ
25 キサン・メチルフェニルシロキサンコポリマー、分子鎖両末端トリメトキシシロキシ基封鎖ジメチルポリシロキサン、分子鎖両末端トリメトキシシロキシ基封鎖ジメチルシロキサン・メチルフェニルシロキサンコポリマー、分子鎖両末端メチルジメトキシシロキシ基封鎖ジメチルポリシロキサン、分子鎖両末端トリエトキ

シシロキシ基封鎖ジメチルポリシロキサン、分子鎖両末端トリメトキシシリルエチル基封鎖ジメチルポリシロキサンが挙げられる。

また、本組成物が縮合反応により硬化する場合には、(B)成分は、一分子中に少なくとも3個のケイ素原子結合加水分解性基を有するシランもしくはその部分

5 加水分解物、および必要に応じて縮合反応用触媒である。

このシラン中のケイ素原子結合加水分解性基としては、前記と同様のアルコキシ基、アルコキシアルコキシ基、アシロキシ基、ケトオキシム基、アルケノキシ基、アミノ基、アミノキシ基、アミド基が例示される。また、このシラン中の加水分解性基以外のケイ素原子に結合している基としては、前記と同様のアルキル

10 基、シクロアルキル基、アルケニル基、アリール基、アラルキル基、ハロゲン化アルキル基が例示される。このようなシランもしくはその部分加水分解物としては、例えば、メチルトリエトキシシラン、ビニルトリエトキシシラン、ビニルトリアセトキシシラン、エチルオルソシリケートが挙げられる。

本組成物において、このシランもしくはその部分加水分解物の含有量は、(A)

15 成分100重量部に対して0.01～20重量部の範囲内であることが好ましく、特に、0.1～10重量部の範囲内であることが好ましい。これは、このシランもしくはその部分加水分解物の含有量が上記範囲の下限未満の量であると、得られる組成物の貯蔵安定性が低下したり、また、接着性が低下する傾向があるからであり、一方、上記範囲の上限をこえる量であると、得られる組成物の硬化が著しく遅くなったりする傾向があるからである。

20

また、縮合反応用触媒は任意の成分であり、例えば、アミノキシ基、アミノ基、ケトオキシム基を有するシランを硬化剤として用いる場合には必須ではない。このような縮合反応用触媒としては、例えば、テトラブチルチタネート、テトライソプロピルチタネート等の有機チタン酸エステル；ジイソプロポキシビス(アセチルアセテート)チタン、ジイソプロポキシビス(エチルアセトアセテート)チタン等の有機チタンキレート化合物；アルミニウムトリス(アセチルアセトネート)、アルミニウムトリス(エチルアセトアセテート)等の有機アルミニウム化合物；ジルコニウムテトラ(アセチルアセトネート)、ジルコニウムテトラブチレート等の

25

有機アルミニウム化合物；ジブチルスズジオクトエート、ジブチルスズジラウレート、ブチルスズー２－エチルヘキソエート等の有機スズ化合物；ナフテン酸スズ、オレイン酸スズ、ブチル酸スズ、ナフテン酸コバルト、ステアリン酸亜鉛等の有機カルボン酸の金属塩；ヘキシルアミン、燐酸ドデシルアミン等のアミン化合物、およびその塩；ベンジルトリエチルアンモニウムアセテート等の４級アンモニウム塩；酢酸カリウム、硝酸リチウム等のアルカリ金属の低級脂肪酸塩；ジメチルヒドロキシルアミン、ジエチルヒドロキシルアミン等のジアルキルヒドロキシルアミン；その他、グアニジル基含有有機ケイ素化合物が挙げられる。

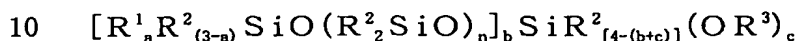
縮合反応用触媒の含有量は限定されないが、(A)成分１００重量部に対して０．０１～２０重量部の範囲内であることが好ましく、特に、０．１～１０重量部の範囲内であることが好ましい。これは、この触媒が必須である場合、この触媒の含有量が上記範囲の下限未満の量であると、得られる組成物が十分に硬化しなくなる傾向があるからであり、一方、上記範囲の上限をこえると、得られる組成物の貯蔵安定性が低下する傾向があるからである。

(C)成分は、本組成物を硬化することにより形成される複合軟磁性体に電磁波吸収特性を付与するための軟磁性粉であり、例えば、組成的な観点から軟磁性金属粉または酸化物磁性粉（フェライト粉）が使用される。このような軟磁性金属粉としては、Fe-Si合金、Fe-Al合金、Fe-Si-Al合金、Fe-Si-Cr合金、Fe-Ni合金、Fe-Ni-Co合金、Fe-Ni-Mo合金、Fe-Co合金、Fe-Si-Al-Cr合金、Fe-Si-B合金、Fe-Si-Co-B合金等の鉄系の合金粉、あるいは鉄粉（カーボニル鉄粉）が例示される。また、このようなフェライト粉としては、Mn-Znフェライト、Mn-Mg-Znフェライト、Mg-Cu-Znフェライト、Ni-Znフェライト、Ni-Cu-Znフェライト、Cu-Znフェライト等のスピネル系フェライト、W型、Y型、Z型、M型等の六方晶フェライトが例示される。フェライト粉はそれ自体不燃物であるため、難燃性の観点からは、金属磁性粉よりも有効である。さらには、フェライトは金属系磁性材よりも電気抵抗が一般的に高いため、絶縁性を要求される場合にも好適である。また、形状面からは、粒状、球状、

- 扁平状が利用可能である。これらのうち、現状の電磁ノイズの周波数を考慮した場合、扁平状の軟磁性粉を用いることが好ましい。これは、軟磁性粉を扁平形状とすることによって軟磁性粉に対する反磁界が抑制され、その結果、現在のノイズ問題の中心である 1 GHz 以下の周波数において磁気共鳴現象を実現できるためである。また、軟磁性粉の大きさとしては、粒度分布計によって求められた粒径の小さいほうから重量を累計して 50% になったときの平均粒径を D_{50} とした場合、 D_{50} が 1 ~ 50 μm の範囲内であることが好ましく、さらには、3 ~ 30 μm の範囲内であることがより好ましい。また、軟磁性粉の形状が扁平状の場合には、アスペクト比が 5 ~ 100 の範囲内であることが好ましく、特に、10 ~ 50 の範囲内であることが好ましい。これらの軟磁性粉のうち、扁平状の軟磁性金属粉が好適に使用される。これは、軟磁性金属粉は、材料の扁平化が比較的容易であるため、その結果、前述したように現在のノイズ問題の中心である 1 GHz 以下の周波数において高い電波吸収性能が実現できるためである。なお、扁平状の軟磁性金属粉は、比表面積が大きく活性が高いため、複合軟磁性体の製造工程での安全性ならびに複合軟磁性体の難燃性の観点から、粉体表面が酸化処理されていることが好ましい。また、これらの軟磁性粉については、単独の種類を用いてもよいし、目的に応じ、複数の種類を併用しても良い。このような (C) 成分は、特公昭 54-27557 号公報や特許第 2,523,388 号公報に記載された製造方法により調製することができる。
- (C) 成分の含有量は限定されないが、良好な電磁波吸収特性を有する複合軟磁性体を形成するためには、(A) 成分 100 重量部に対して 40 ~ 1,000 重量部の範囲内であることが好ましい。特に電磁波吸収特性の優れた複合軟磁性体を形成するためには、(C) 成分の含有量は、(A) 成分 100 重量部に対して 50 ~ 1,000 重量部の範囲内であることが好ましく、さらに、100 ~ 1,000 重量部の範囲内であることが好ましく、特に、200 ~ 1,000 重量部の範囲内であることが好ましい。一方、成形性の優れた複合軟磁性体形成用硬化性シリコン組成物を得るためには、(C) 成分の含有量は、(A) 成分 100 重量部に対して 40 ~ 900 重量部の範囲内であることが好ましく、特に、40 ~ 800 重量部の範

5 圈内であることが好ましい。以上のことから、(C)成分の含有量は、(A)成分 100重量部に対して50～900重量部の範囲内であることが好ましく、さらに、100～900重量部の範囲内であることが好ましく、特に、200～800重量部の範囲内であることが好ましい。これは、(C)成分の含有量が上記範囲の
 5 下限未満であると、得られる複合軟磁性体の磁気特性が不十分となる傾向があるからであり、一方、上記範囲の上限を超えると、得られる(A)成分中に(C)成分を均一に分散できなくなる傾向があり、かつ、成形が困難となるからである。

(D)成分は、本組成物中に(C)成分を高充填しても、得られる組成物の成形性を悪化させないためのオルガノシロキサンであり、一般式：



で表される。上式中の R^1 は脂肪族不飽和結合を有する一価炭化水素基であり、例えば、ビニル基、アリル基、ブテニル基、ヘキセニル基、デセニル基、ウンデセニル基、ドデセニル基、トリデセニル基、テトラデセニル基、ペンタデセニル基、ヘキサデセニル基、ヘプタデセニル基、オクタデセニル基、ノナデセニル基、
 15 エイコセニル基等の直鎖状アルケニル基；イソプロペニル基、2-メチルー2-プロペニル基、2-メチルー10-ウンデセニル基等の分岐鎖状アルケニル基；ビニルシクロヘキシル基、ビニルシクロドデシル基等の脂肪族不飽和結合を有する環状アルキル基；ビニルフェニル基等の脂肪族不飽和結合を有するアリール基；ビニルベンジル基、ビニルフェネチル基等の脂肪族不飽和結合を有するアラ
 20 ルキル基が挙げられ、好ましくは、直鎖状アルケニル基であり、特に好ましくは、ビニル基、アリル基、ヘキセニル基である。 R^1 中の脂肪族不飽和結合の位置は限定されないが、結合するケイ素原子より遠い位置であることが好ましい。また、上式中の R^2 は同種もしくは異種の脂肪族不飽和結合を有さない一価炭化水素基であり、例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、ヘキシル基、デ
 25 シル基等の直鎖状アルキル基；イソプロピル基、ターシャリーブチル基、イソブチル基等の分岐鎖状アルキル基；シクロヘキシル基等の環状アルキル基；フェニル基、トリル基、キシリル基等のアリール基；ベンジル基、フェネチル基等のアラ
 ルキル基が挙げられ、好ましくは、アルキル基、アリール基であり、さらに好ま

しくは、炭素原子数 1～4 のアルキル基であり、特に好ましくは、メチル基、エチル基である。また、 R^3 はアルキル基またはアルコキシアルキル基であり、例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、ヘキシル基、デシル基等の直鎖状アルキル基；イソプロピル基、ターシャリーブチル基、イソブチル基等の分岐鎖状アルキル基；シクロヘキシル基等の環状アルキル基；メトキシエトキシ基、エトキシエトキシ基、メトキシプロポキシ基等のアルコキシアルキル基が挙げられ、好ましくは、アルキル基であり、特に好ましくは、メチル基、エチル基、プロピル基である。また、上式中の a は 1～3 の整数であり、好ましくは 1 である。また、上式中の b は 1～3 の整数であり、好ましくは 1 である。また、上式
 10 中の c は 1～3 の整数であり、好ましくは 3 である。ここで、上式中の $b + c$ は 2～4 の整数である。また、上式中の n は 0 以上の整数であり、好ましくは 0～100 の整数であり、より好ましくは 1～100 の整数であり、より好ましくは 5～100 の整数であり、より好ましくは 10～100 の整数であり、特に好ましくは 10～75 の整数である。

15 このような (D) 成分を調製する方法としては、例えば、一般式：

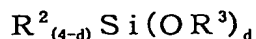


で表される分子鎖片末端シラノール基封鎖オルガノシロキサンと一分子中に少なくとも 2 個のケイ素原子結合アルコキシ基を有するアルコキシシラン化合物とを酢酸等の酸触媒の存在下で脱アルコール縮合反応させる方法が挙げられる。

20 このシラノール末端オルガノシロキサンにおいて、式中の R^1 は脂肪族不飽和結合を有する一価炭化水素基であり、前記と同様の基が例示される。また、式中の R^2 は同種もしくは異種の脂肪族不飽和結合を有さない一価炭化水素基であり、前記と同様の基が例示される。また、上式中の a は 1～3 の整数であり、好ましくは 1 である。また、上式中の n は 0 以上の整数であり、好ましくは 0～100 の
 25 整数であり、より好ましくは 1～100 の整数であり、より好ましくは 5～100 の整数であり、より好ましくは 10～100 の整数であり、特に好ましくは 10～75 の整数である。

また、一分子中に少なくとも 2 個のケイ素原子結合アルコキシ基を有するアル

コキシシラン化合物は、一般式：



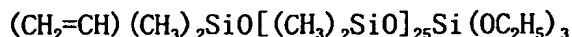
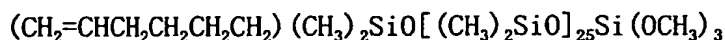
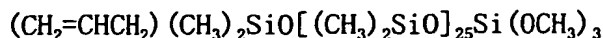
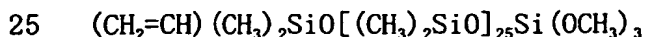
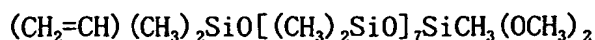
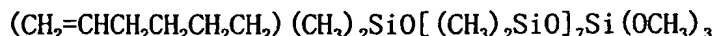
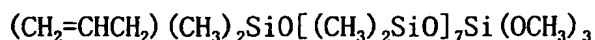
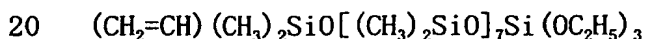
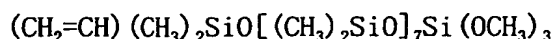
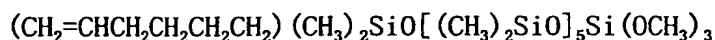
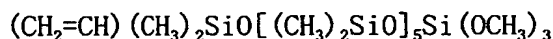
で表される。このアルコキシシラン化合物において、式中の R^2 は脂肪族不飽和結合を有さない一価炭化水素基であり、前記と同様の基が例示される。また、 R^3 は

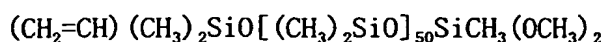
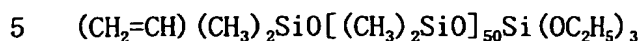
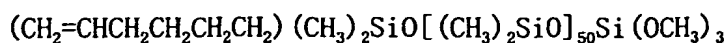
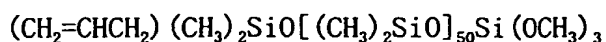
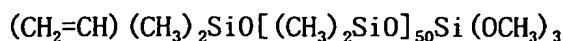
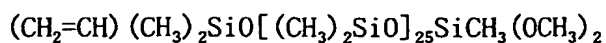
5 アルキル基またはアルコキシアルキル基であり、前記と同様の基が例示される。

また、式中の d は2～4の整数であり、好ましくは4である。

このようなアルコキシシラン化合物としては、例えば、ジメトキシジメチルシラン、ジメトキシジエチルシラン、ジエトキシジメチルシラン、ジエトキシジエチルシラン等のジアルコキシジアルキルシラン化合物；トリメトキシメチルシラ
10 ン、トリメトキシエチルシラン、トリメトキシプロピルシラン、トリエトキシメチルシラン、トリエトキシエチルシラン等のトリアルコキシアルキルシラン化合物；テトラメトキシシラン、テトラエトキシシラン、テトラプロポキシシラン等のテトラアルコキシシラン化合物が挙げられる。また、酸触媒としては、例えば、酢酸、プロピオン酸等の脂肪酸が挙げられる。

15 このような(D)成分としては、次のような化合物が例示される。





(D)成分の含有量は、(C)成分の表面を処理して、得られる複合軟磁性体形成用硬化性シリコーン組成物中への分散性を向上できる量であれば限定されないが、(C)成分 100 重量部に対して 0.05～10 重量部の範囲内であることが好ましく、さらに、0.1～10 重量部の範囲内であることが好ましく、特に、0.1～5 重量部の範囲内であることが好ましい。これは、(D)成分の含有量が上記範囲の下限未満であると、(C)成分を多量に含有した場合に、得られる複合軟磁性体形成用硬化性シリコーン組成物の成形性が低下したり、得られる複合軟磁性体の貯蔵中に(C)成分が沈降分離しやすくなる傾向があるからであり、一方、上記

10 範囲の上限を超えると、得られる複合軟磁性体の物理的強度が低下する傾向があるからである。

(C)成分の表面を(D)成分で処理する方法としては、例えば、(C)成分と(D)成分を混合して、(C)成分の表面を予め(D)成分で処理する方法、(A)成分と(C)成分を混合した後、(D)成分を混合して、(A)成分中で(C)成分の表面を(D)成分で処理する方法が挙げられ、特に、後者の方法が好ましい。このようにして得られた本組成物中には、(D)成分は(C)成分の表面を処理した状態で含有されているか、または本組成物中に単に含有されていてもよい。

20

本組成物には、本発明の目的を損なわない限り、その他任意の成分として、例えば、ヒュームドシリカ、沈降性シリカ、ヒュームド酸化チタン等の充填剤、この充填剤の表面を有機ケイ素化合物により疎水化処理した充填剤；その他、顔料、染料、蛍光染料、耐熱添加剤、トリアゾール系化合物等の難燃性付与剤、可塑剤、接着付与剤を含有してもよい。特に、本組成物がヒドロシリル化反応により硬化する場合には、本組成物の取扱作業性を向上させるため、2-メチルー3-

25

ブチン-2-オール、2-フェニル-3-ブチン-2-オール、1-エチニル-1-シクロヘキサノール等のアセチレン系化合物、3-メチル-3-ペンテン-1-イン、3,5-ジメチル-3-ヘキセン-1-イン等のエン-イン化合物、ヒドラジン系化合物、フォスフィン系化合物、メルカプタン系化合物等の硬化反応抑制剤を含有することが好ましい。この硬化反応抑制剤の含有量は限定されないが、本組成物に対して0.001~1.0重量%の範囲内であることが好ましい。

次に、本発明の複合軟磁性体について詳細に説明する。

本発明の複合軟磁性体は、前記組成物を硬化してなることを特徴とする。前記組成物を硬化させる方法は限定されず、例えば、前記組成物を成形後、室温で放置する方法、前記組成物を成形後、50~200℃に加熱する方法、射出成形する方法が挙げられる。また、このようにして得られる複合軟磁性体の性状は限定されないが、例えば、高硬度のゴム状、低硬度のゴム状、ゲル状が挙げられる。また、複合軟磁性体の形態については限定されず、例えば、金型を使用することにより各種形状に成形したもの他、シート状での形態も挙げられる。このようなシート状の複合軟磁性体としては、両面に剥離性のフィルムを密着したもの、あるいは、片面にフィルムを一体化し、もう片面に剥離性のフィルムを密着したものが例示される。

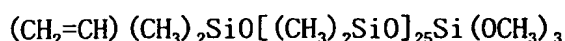
シート状の複合軟磁性体を作製する方法としては、前記組成物の硬化物に対して剥離可能なフィルムの上に前記組成物を挟み込んだ状態で、所定の厚さにプレスし、加熱硬化させる方法が例示される。この加熱方法としては、プレスしながら加熱するか、一旦プレスから取り出して、オープンで加熱する方法のどちらでも良い。

また、片面にフィルムを一体化してなるシート状の複合軟磁性体を作製する方法としては、必要により、フィルムの表面を予め、シランカップリング剤、チタンカップリング剤、アルミニウムカップリング剤等によりプライマー処理するか、またはプラズマ処理、コロナ処理、アルカリ処理等により表面処理を施した易接着性のフィルムと、前記組成物の硬化物に対して剥離可能なフィルムとの間に

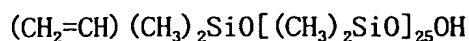
、前記組成物を挟み込んだ状態で、所定の厚さにプレスし、加熱硬化させる方法が例示される。

実施例

- 5 本発明の複合軟磁性体形成用硬化性シリコーン組成物および複合軟磁性体を実施例、比較例により詳細に説明する。なお、実施例中の特性は25℃における値である。なお、実施例で用いた、式：



で表されるオルガノシロキサンオリゴマーは、式：



- 10 で表されるオルガノシロキサンオリゴマーにテトラメトキシシラン（前記オルガノシロキサンオリゴマー1モルに対して10モルとなる量）を加えて、酢酸触媒の存在下で加熱することにより、脱メタノール縮合反応させることにより調製した。

- 15 また、複合軟磁性体形成用硬化性シリコーン組成物の成形性は次のようにして評価した。

[複合軟磁性体形成用硬化性シリコーン組成物の成形性]

- 20 厚さ0.2mmの四フッ化エチレン樹脂フィルムの上に、複合軟磁性体形成用硬化性シリコーン組成物の厚さが2mmとなるように挟み込んだ状態で、120℃で60分間加熱して、前記組成物を硬化させた。その後、四フッ化エチレン樹脂フィルムを剥がし取り、シート状の複合軟磁性体を成形できたかどうかを観察し、均一な複合軟磁性体を成形できた場合を成形性が良好であるとして：○、均一な複合軟磁性体を成形できなかった場合を成形性が不良であるとして：×、として評価した。

- 25 また、複合軟磁性体の電磁波吸収特性、難燃性、および熱伝導率は次のようにして測定した。

[複合軟磁性体の電磁波吸収特性]

厚さ0.2mmのポリプロピレン樹脂フィルムの上に、複合軟磁性体形成用硬化性シリコーン組成物の厚さが0.5mmとなるように挟み込んだ状態で、120℃で6

- 0分間加熱して、前記組成物を硬化させ、その後、ポリプロピレン樹脂フィルムを剥がし取り、シート状の複合軟磁性体を作成した。この複合軟磁性体の透磁率をアジレントテクノロジー社製のRFインピーダンス／マテリアルアナライザ4291Bを使用して、周波数10MHzにて測定した。なお、軟磁性体における電磁波吸収性能は、磁気共鳴現象によるエネルギー吸収により発生し、材料の透磁率が大きいほど磁気共鳴によるエネルギー吸収が増加するため、ここでは、透磁率を測定することにより電磁波吸収特性を評価した。

[複合軟磁性体の難燃性]

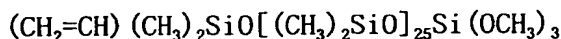
- 10 厚さ0.2mmの四フッ化エチレン樹脂フィルムの中に、複合軟磁性体形成用硬化性シリコン組成物の厚さが0.5mmとなるように挟み込んだ状態で、120℃で60分間加熱して、前記組成物を硬化させた。その後、四フッ化エチレン樹脂フィルムを剥がし取り、シート状の複合軟磁性体を成形し、UL 94に規定の20mm垂直燃焼試験に従って難燃性を評価した。

[複合軟磁性体の熱伝導率]

- 15 複合軟磁性体形成用硬化性シリコン組成物の厚さが1.5mmとなるように成形した状態で、120℃で60分間加熱して、前記組成物を硬化させた。得られた複合軟磁性体の熱伝導率をJIS R 2616に規定の熱線法に従って、京都電子工業株式会社製の迅速熱伝導率計QTM-500により測定した。

[実施例1]

- 20 混合装置により、粘度が400mPa・sである分子鎖両末端ジメチルビニルシロキシ基封鎖ジメチルポリシロキサン（ビニル基の含有量＝0.44重量%）9.87重量部、粘度が35,000mPa・sである分子鎖両末端ジメチルビニルシロキシ基封鎖ジメチルポリシロキサン（ビニル基の含有量＝0.09重量%）20.58重量部、特許第2,523,388号公報に記載された方法に基づいて調製された、
25 D₅₀（粒度分布計で測定された粒子径の小さいほうから重量を累計して50%になったときの粒子径）が15μmであり、比表面積が1.4m²/gである、粉碎扁平加工を施し、表面に酸化皮膜の処理を施したFe-Si-Cr合金粉67.5重量部、および式：



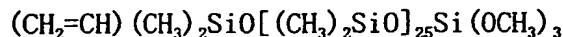
で表されるオルガノシロキサンオリゴマー 1.0 重量部を混合して、前記合金粉の表面を該オルガノシロキサンオリゴマーにより処理した。

次に、粘度が 5 mPa・s であり、一分子中に平均 5 個のケイ素原子結合水素原子を有する分子鎖両末端トリメチルシロキシ基封鎖ジメチルシロキサン・メチルハイドロジェンシロキサンコポリマー（ケイ素原子結合水素原子の含有量＝0.74 重量％）0.9 重量部、および硬化反応抑制剤として、1-エチニル-1-シクロヘキサノール 0.05 重量部を混合した。

最後に、この混合物に、白金含有量が 0.5 重量％である白金の 1,3-ジビニル-1,1,3,3-テトラメチルジシロキサン錯体 0.1 重量部を混合して複合軟磁性体形成用シリコーンゴム組成物を調製した。この複合軟磁性体形成用シリコーンゴム組成物の成形性、およびこれを硬化して得られたシート状複合軟磁性体の諸特性を表 1 に示した。

[実施例 2]

混合装置により、粘度が 10,000 mPa・s である分子鎖両末端ジメチルビニルシロキシ基封鎖ジメチルポリシロキサン（ビニル基の含有量＝0.12 重量％）19.92 重量部、特許第 2,523,388 号公報に記載された方法に基づいて調製された、 D_{50} （粒度分布計で測定された粒子径の小さいほうから重量を累計して 50% になったときの粒子径）が $15\ \mu\text{m}$ であり、比表面積が $0.4\ \text{m}^2/\text{g}$ である、粉碎扁平加工を施し、表面に酸化皮膜の処理を施した Fe-Si-Cr 合金粉 77.5 重量部、および式：



で表されるオルガノシロキサンオリゴマー 1.0 重量部を混合し、前記合金粉の表面を該オルガノシロキサンオリゴマーにより処理した。

次に、粘度が 20 mPa・s であり、一分子中に平均 3 個のケイ素原子結合水素原子を有する分子鎖両末端トリメチルシロキシ基封鎖ジメチルシロキサン・メチルハイドロジェンシロキサンコポリマー（ケイ素原子結合水素原子の含有量＝0.13 重量％）1.43 重量部、および硬化反応抑制剤として、1-エチニル-1-シク

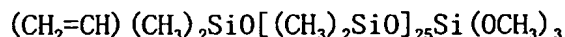
ロヘキサノール 0.05 重量部を混合した。

最後に、この混合物に、白金含有量が 0.5 重量%である白金の 1,3-ジビニル-1,1,3,3-テトラメチルジシロキサン錯体 0.1 重量部を混合して複合軟磁性体形成用シリコーンゴム組成物を調製した。この複合軟磁性体形成用シリコーンゴム組成物の成形性、およびこれを硬化して得られたシート状複合軟磁性体の諸特性を表 1 に示した。

[実施例 3]

混合装置により、粘度が 400 mPa・s である分子鎖両末端ジメチルビニルシロキシ基封鎖ジメチルポリシロキサン（ビニル基の含有量=0.44 重量%）3.89 重量部、粘度が 35,000 mPa・s である分子鎖両末端ジメチルビニルシロキシ基封鎖ジメチルポリシロキサン（ビニル基の含有量=0.09 重量%）8.11 重量部、特公昭 54-27557 号公報に記載された方法に基づいて調製された、D₅₀

（粒度分布計で測定された粒子径の小さいほうから重量を累計して 50%になったときの粒子径）が 10 μm であり、比表面積が 0.5 m²/g である、粉碎加工を施した Mn-Mg-Zn フェライト粉 86.5 重量部、および式：



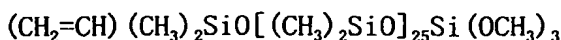
で表されるオルガノシロキサンオリゴマー 1.0 重量部を混合し、前記フェライト粉の表面を該オルガノシロキサンオリゴマーにより処理した。

次に、粘度が 5 mPa・s であり、一分子中に平均 5 個のケイ素原子結合水素原子を有する分子鎖両末端トリメチルシロキシ基封鎖ジメチルシロキサン・メチルヒドロジェンシロキサンコポリマー（ケイ素原子結合水素原子の含有量=0.74 重量%）0.35 重量部、および硬化反応抑制剤として、1-エチニル-1-シクロヘキサノール 0.05 重量部を混合した。

最後に、この混合物に、白金含有量が 0.5 重量%である白金の 1,3-ジビニル-1,1,3,3-テトラメチルジシロキサン錯体 0.1 重量部を混合して複合軟磁性体形成用シリコーンゴム組成物を調製した。この複合軟磁性体形成用シリコーンゴム組成物の成形性、およびこれを硬化して得られたシート状複合軟磁性体の諸特性を表 1 に示した。

[比較例 1]

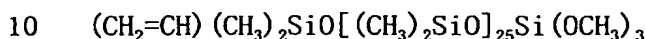
実施例 1 において、式：



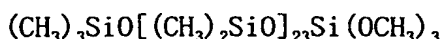
- 5 で表されるオルガノシロキサンオリゴマーを添加しない以外は実施例 1 と同様に
して複合軟磁性体形成用シリコーンゴム組成物を調製した。この複合軟磁性体形
成用シリコーンゴム組成物の成形性、およびこれを硬化して得られたシート状複
合軟磁性体の諸特性を表 1 に示した。

[比較例 2]

実施例 1 において、式：



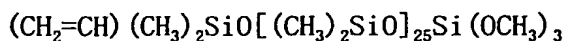
で表されるオルガノシロキサンオリゴマーの替わりに、式：



- 15 で表されるオルガノシロキサンオリゴマーを同量添加した以外は実施例 1 と同様
にして複合軟磁性体形成用シリコーンゴム組成物を調製した。この複合軟磁性体
形成用シリコーンゴム組成物の成形性、およびこれを硬化して得られたシート状
複合軟磁性体の諸特性を表 1 に示した。

[比較例 3]

実施例 3 において、式：



- 20 で表されるオルガノシロキサンオリゴマーを添加しない以外は実施例 3 と同様に
して複合軟磁性体形成用シリコーンゴム組成物を調製した。この複合軟磁性体形
成用シリコーンゴム組成物の成形性、およびこれを硬化して得られたシート状複
合軟磁性体の諸特性を表 1 に示した。

表 1

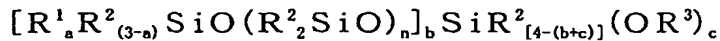
区分 項目	本 発 明			比 較 例		
	実施例 1	実施例 2	実施例 3	比較例 1	比較例 2	比較例 3
成形性	○	○	○	× ボイドあり	× ボイドあり	× シートにならず
透磁率	1.9	1.5	1.3	1.5	1.0	—
難燃性	V-1 相当	V-0 相当	V-0 相当	V-1 相当	V-1 相当	—
熱伝導率 (W/mK)	1.4	1.5	1.4	1.0	1.0	—

産業上の利用可能性

- 本発明の複合軟磁性体形成用硬化性シリコーン組成物は、電磁波吸収特性が優
- 5 れる複合軟磁性体を得るため軟磁性粉を高充填しても、前記複合軟磁性体を成形性良く形成することができる。また、本発明の複合軟磁性体は電磁波吸収特性が優れ、かつ難燃性および熱伝導性が優れる電子機器の電磁ノイズ対策材料を提供することができる、さらには、ハロゲン系材料を含まない場合でも、難燃性を実現できるため、環境負荷の少ない電磁ノイズ対策材料を提供することができる。

請求の範囲

1. (A)硬化性オルガノポリシロキサン、(B)硬化剤、(C)軟磁性粉、および(D)一般式：



5 (式中、 R^1 は脂肪族不飽和結合を有する一価炭化水素基であり、 R^2 は同種もしくは異種の脂肪族不飽和結合を有さない一価炭化水素基であり、 R^3 はアルキル基またはアルコキシアルキル基であり、 a は1～3の整数であり、 b は1～3の整数であり、 c は1～3の整数であり、かつ、 $b+c$ は2～4の整数であり、 n は0以上の整数である。)

10 で表されるオルガノシロキサン、から少なくともなる複合軟磁性体形成用硬化性シリコーン組成物。

2. 硬化性シリコーン組成物がヒドロシリル化反応により硬化することを特徴とする、請求項1記載の複合軟磁性体形成用硬化性シリコーン組成物。

3. (C)成分が、軟磁性金属粉または酸化物磁性粉（フェライト粉）であることを特徴とする、請求項1記載の複合軟磁性体形成用硬化性シリコーン組成物。

4. 軟磁性金属粉が、表面が酸化処理されている扁平状金属粉であることを特徴とする、請求項3記載の複合軟磁性体形成用硬化性シリコーン組成物。

5. (C)成分の含有量が、(A)成分100重量部に対して40～1,000重量部であることを特徴とする、請求項1記載の複合軟磁性体形成用硬化性シリコーン組成物。

6. (D)成分の含有量が、(C)成分100重量部に対して0.05～10重量部であることを特徴とする、請求項1記載の複合軟磁性体形成用硬化性シリコーン組成物。

7. 請求項1乃至6のいずれか1項記載の硬化性シリコーン組成物を硬化してなる複合軟磁性体。

8. シート状であることを特徴とする、請求項7記載の複合軟磁性体。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP03/06031

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
Int.Cl⁷ C08L83/05, C08J5/18, H05K9/00, C08L83/07

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)
Int.Cl⁷ C08L83/00-83/16, C08J5/18, H05K9/00

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched
Jitsuyo Shinan Koho 1926-1996 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2003
Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2003 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2003

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)
WPI/L, CAS, ONLINE

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
P, A	WO 02/092693 A1 (DOW CORNING TORAY SILICONE CO., LTD.), 21 November, 2002 (21.11.02), Claims 1 to 13; page 9, lines 12 to 16; page 13, line 22 to page 16, line 14 (Family: none)	1-8
A	JP 2002-129019 A (Shin-Etsu Chemical Co., Ltd.), 09 May, 2002 (09.05.02), Claims 1 to 9; Par. Nos. [0004], [0013], [0021] to [0023]; particularly, general formula (I); chemical formula (1) & EP 1203785 A1 & US 2002/0077439 A1	1-8

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C. ☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents: "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance "E" earlier document but published on or after the international filing date "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed	"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art "&" document member of the same patent family
---	--

Date of the actual completion of the international search
11 August, 2003 (11.08.03)

Date of mailing of the international search report
26 August, 2003 (26.08.03)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP03/06031

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 6-9657 A (DOW CORNING TORAY SILICONE CO., LTD.), 18 January, 1994 (18.01.94), Claims 1 to 2 & EP 497278 A1 & US 5194649 A	1-8
A	JP 4-252266 A (DOW CORNING TORAY SILICONE CO., LTD.), 08 September, 1992 (08.09.92), Claim 1; particularly, components (C) & EP 497277 A2	1-8
A	JP 10-130508 A (DOW CORNING TORAY SILICONE CO., LTD.), 19 May, 1998 (19.05.98), Par. No. [0018]; particularly, chemical formula (1) & EP 839870 A2 & US 5932145 A	1-8
A	JP 11-12481 A (DOW CORNING TORAY SILICONE CO., LTD.), 19 January, 1999 (19.01.99), Par. No. [0017]; particularly, chemical formula (1) & US 6040362 A	1-8
A	JP 2000-44583 A (Nippon Unicar Co., Ltd.), 15 February, 2000 (15.02.00), Claims 1 to 13 (Family: none)	1-8
A	JP 2001-294752 A (Shin-Etsu Chemical Co., Ltd.), 23 October, 2001 (23.10.01), Claims 1 to 8; examples; particularly, chemical formula (1) & EP 1146085 A1 & US 2001/0051673 A1	1-8
A	JP 10-92623 A (Tokin Corp.), 10 April, 1998 (10.04.98), Claims 1 to 2 (Family: none)	1-8

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl⁷ C08L 83/05, C08J 5/18, H05K 9/00,
C08L 83/07,

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl⁷ C08L 83/00-83/16,
C08J 5/18,
H05K 9/00,

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1926-1996年
日本国公開実用新案公報 1971-2003年
日本国実用新案登録公報 1996-2003年
日本国登録実用新案公報 1994-2003年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

WPI/L
CAS ONLINE

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
PA	WO 02/092693 A1 (DOW CORNING TORAY SILICONE CO., LTD.) 2002.11.21, 請求の範囲1~13, 第9頁第12~16行, 第13頁22行~第16頁第14行(ファミリーなし)	1-8
A	JP 2002-129019 A (信越化学工業株式会社) 2002.05.09, 請求項1~9, 段落[0004][0013][0021]~[0023], 特に一般式(I)[化1]参照, & EP 1203785 A1 & US 2002/0077439 A1	1-8

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

- 「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)
「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

- 「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

11.08.03

国際調査報告の発送日

26.08.03

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)
郵便番号 100-8915
東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

前田 孝泰

4J

9456

電話番号 03-3581-1101 内線 3457

C (続き) 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A	JP 6-9657 A (東レ・ダウニング・シリコン株式会社) 1994.01.18, 請求項1~2 &EP 497278 A1&US 5194649 A	1-8
A	JP 4-252266 A (東レ・ダウニング・シリコン株式会社) 1992.09.08, 請求項1, 特に成分(C) 参照 &EP 497277 A2	1-8
A	JP 10-130508 A (東レ・ダウニング・シリコン株式会社) 1998.05.19, 段落[0018], 特に[化1] 参照 &EP 839870 A2&US 5932145 A	1-8
A	JP 11-12481 A (東レ・ダウニング・シリコン株式会社) 1999.01.19, 段落[0017], 特に[化1] 参照 &US 6040362 A	1-8
A	JP 2000-44583 A (日本ユニカー株式会社) 2000.02.15, 請求項1~13(ファミリーなし)	1-8
A	JP 2001-294752 A (信越化学工業株式会社) 2001.10.23, 請求項1~8, [実施例] 欄, 特に[化1] 参照 &EP 1146085 A1&US 2001/0051673 A1	1-8
A	JP 10-92623 A (株式会社トーキン) 1998.04.10, 請求項1~2(ファミリーなし)	1-8